

Pengaruh Variasi Pelarut Antara
Amoniak dan Aquades terhadap
karakterisasi

PENGARUH VARIASI PELARUT ANTARA AMONIAK DAN AQUADES TERHADAP KARAKTERISASI DIFRAKSI SINAR-X BAHAN SnO₂

Posman Manurung

E-mail: reip65@yahoo.com dan posman65@unila.ac.id

Penulis

Posman Manurung adalah staf pengajar pada Departemen Fisika FMIPA Universitas Lampung sejak tahun 1990. Gelar S2 diperoleh dari ITB Bandung tahun 1991 dan S3 dari Curtin University of Technology, Perth Australia tahun 2001.

Bidang peminatan: *Ceramics and instrumentation*

Abstract

Synthesis has been done and characterization of X-ray diffraction (XRD) SnO₂ materials produced by the precipitation process from starting materials with SnCl₂ variation between ammonia and solvent aquades each one to one up to six. C for 4 hours °Sintering temperature of the sample conducted at 1050. The results of qualitative analysis of the sample shows clearly the presence of SnO₂ phase with tetragonal crystal structure and space group P₄₂/MNM. The results of refining the XRD data using SnO₂ sample Rietveld method between 1.52 to 4.08 χ^2 produces the best matching score (In general, all cell parameters length is the same sample. In comparison the variation of solvent 1:4, 1:5 and 1:6 high changes in the hkl diffraction peak (110) and (011) as a result of changes in grain size sample.

Keywords

Tin dioxide (SnO₂), Presipitation, and Rietveld Analysis

PENDAHULUAN

Oksida timah (SnO_2) telah banyak diteliti sebagai bahan oksida metal untuk pendeteksian gas sejak sensor-sensor gas muncul di pasaran pada tahun 1968 (Nakahara dan Koda, 1992). Dalam fisika zat padat, bahan Sn digolongkan sebagai bahan semikonduktor dari kolom IV (Sze, 1985). Ternyata sifat semi-penghantaran pada bahan Sn akan tetap muncul sekalipun dalam bentuk SnO_2 . Aplikasi SnO_2 sebagai sensor gas semikonduktor sangat luas digunakan untuk mendeteksi gas-gas seperti gas oksigen, gas beracun dan gas yang mudah terbakar. SnO_2 dapat digunakan sebagai sensor gas adalah karena jumlah elektron pada pita konduksinya ditentukan oleh penyerapan jenis-jenis gas pada permukaannya. Sensor ini dapat bekerja pada temperatur 300°C sampai 400°C (Santos dkk, 2000). Mekanisme pendeteksian melibatkan perubahan konduktansi kelistrikan yang disebabkan oleh adsorpsi gas di atas permukaan semikonduktor yang sangat tergantung pada stoikiometri permukaan. Dapat ditambahkan, sifat-sifat pendeteksian juga dipengaruhi oleh rona mikrostruktur seperti ukuran grain (butir) partikel-partikel semikonduktor, geometri dan koneksi diantara partikel-partikelnya.

Berkaitan dengan geometri dan koneksi antara partikel-partikelnya, dalam paper ini akan dicoba meneliti lebih jauh mengenai pola difraksi sinar-X (XRD) bahan. Seperti diketahui, pola XRD suatu bahan, disamping tergantung pada struktur kristal juga dapat dipengaruhi beberapa faktor seperti, ukuran butir, parameter sel dan posisi atom dalam sel (Cullity, 1978).

Studi pendahuluan dengan cara mengendapkan timah diklorida terhadap pelarut NH_3 dan aquades SnO_2 telah dilakukan oleh Maiyuni (2005). Tekanan yang dilakukan pada sampel adalah sebesar 120 MPa dengan temperatur sintering 1050°C .

Berdasarkan latar belakang tersebut, maka penelitian ini dilanjutkan dengan memvariasikan pelarut pada pengendapan SnO_2 . Tujuannya adalah untuk mengetahui karakteristik difraksi sinar-Xnya. Parameter yang akan menjadi pertimbangan dalam penelitian ini adalah pengaruh konsentrasi NH_3 dengan pelarut aquades. Selanjutnya sebelum bahan endapan dikeringkan akan dilakukan terlebih dahulu proses *milling*. Proses ini bertujuan untuk membantu pembentukan kehomogenan dan kehalusan larutan sehingga diharapkan hasil sinteringnya kelak akan lebih baik.

METODE PENELITIAN

Bahan awal yang digunakan dalam preparasi sampel terdiri dari serbuk *tin (II) chloride dihydrate* $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, NH_3 dan aquades. Serbuk SnCl_2 dibuat tetap sementara pelarut NH_3 dan aquades divariasikan seperti terlihat pada Tabel 1.

Tabel 1. Komposisi kimia antara serbuk SnCl_2 dan pelarut NH_3 dan H_2O .

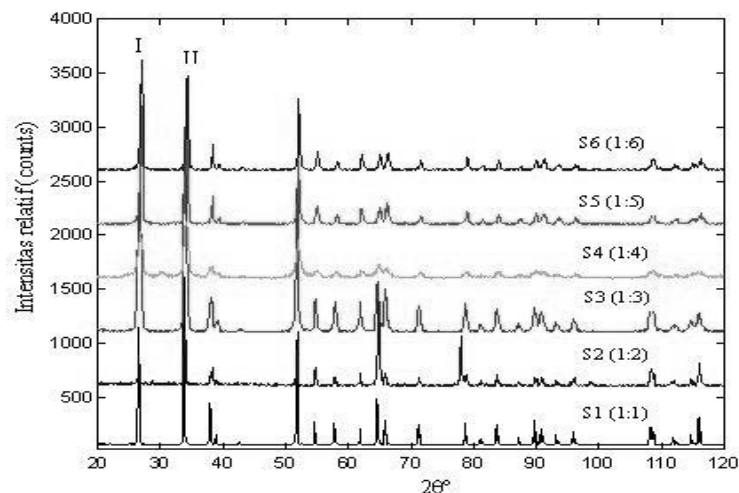
Sampel	SnCl_2 (gr)	NH_3 (ml)	H_2O (ml)
S1 (1:1)	15	75,000	75,000
S2 (1:2)	15	50,000	100,000
S3 (1:3)	15	18,750	56,250
S4 (1:4)	15	15,000	60,000
S5 (1:5)	15	12,500	62,500
S6 (1:6)	15	10,700	64,300

Pertama timah diklorida (SnCl_2) ditimbang kemudian ditambahkan pada pelarut amonia dan aquades yang telah diukur pH-nya. Ketiga bahan tersebut dicampur dalam gelas ukur sesuai dengan komposisi masing-masing dan diaduk dengan menggunakan alat pengaduk magnetik stirrer selama kira-kira 3 jam. Setelah itu endapan disaring dengan memakai kertas millipore ($0,02 \mu\text{m}$) dan selanjutnya dicuci bersih dengan aquades. Sebelum bahan endapan dikeringkan pada suhu masing-masing 80°C , 150°C dan 400°C selama 24 jam dilakukan terlebih dahulu proses milling. Pemanasan ini bertujuan untuk menguapkan H_2O dan menghilangkan zat lain yang tersisa dalam sampel sampai diperoleh serbuk kering. Masing-masing serbuk kering digerus sampai halus lalu dibuatkan pelet dengan tekanan 120 MPa. Selanjutnya pelet disinter pada suhu 1050°C . Pengambilan data XRD dilakukan dengan alat SHIMADZU XD-G10 di Laboratorium P3IB Batan Serpong, dengan setting tegangan dan arus masing-masing sebesar 30 kV dan 30 mA dengan celah divergen 1° . Sudut awal dan akhir difraksi adalah dari 10° dan 120° , step size $0,04^\circ$ dengan preset time 1 detik, serta menggunakan panjang gelombang (λ) target Cu (tembaga) sebesar $1,54056 \text{ \AA}$.

HASIL DAN PEMBAHASAN

A. XRD

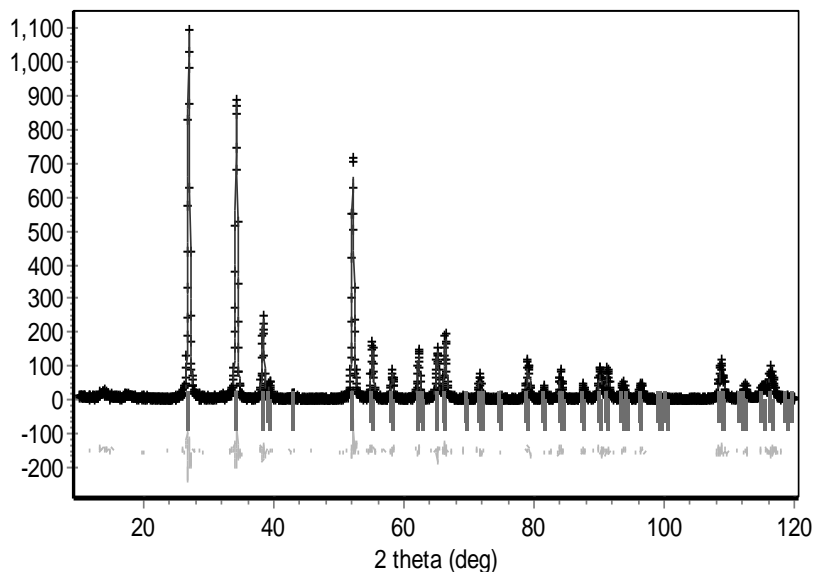
Pertama sekali dilakukan analisis kualitatif terhadap data XRD. Untuk mengidentifikasi kehadiran fasa dilakukan dengan metode pencocokan antara pangkalan data XRD dengan data pengamatan sampel. Metode seperti ini biasanya disebut dengan istilah *search match analysis*. Software atau perangkat lunak yang digunakan untuk identifikasi adalah PCPDFWIN versi 1.3 JCPDS-ICDD 1997. Langkah penggunaan software ini didasarkan pada pengurutan nilai jarak antar atom (d) dari data pengamatan untuk 3 intensitas terbesar terlebih dahulu baru puncak yang lain. Harga d tabel dan d data pengamatan dibandingkan dengan batas selisih $< 0,01 \text{ \AA}$. Setelah langkah-langkah tersebut, diperoleh data PDF (powder diffraction file) dengan nomor 41-1445 (Winchel and Winchel, 1964). Hasil XRD sampel dapat dilihat pada Gambar 1.



Gambar 1. Difraktogram sinar-X sampel S1, S2, S3, S4, S5 dan S6. Tanda I dan II menunjukkan puncak hkl (110) dan (011). Panjang gelombang sinar-X yang digunakan adalah $1,5406 \text{ \AA}$.

Data difraktogram dianalisis secara kualitatif dengan metode *search mach analysis*. Tiga puncak paling tinggi berada pada sudut hamburan $2\theta^\circ = 26,572; 33,856$ dan $51,743^\circ$. Secara umum semua puncak difraksi sudah menunjukkan puncak bahan SnO_2 . Dari sini sudah dapat dipastikan bahwa preparasi bahan sudah sesuai dengan yang diharapkan. Selanjutnya data XRD akan dihaluskan dengan analisis Rietveld (Rietveld, 1969). Metode ini didasarkan pada *fitting* (pencocokan) pola difraksi secara keseluruhan yang melibatkan fungsi profil yang sesuai. Parameter yang digunakan dalam program analisis Rietveld di antaranya adalah parameter *zero point error*, cacah latar belakang, kisi struktur kristal. Perangkat lunak untuk menghaluskan data digunakan Rietica (Hunter dan Howard, 2000). Salah satu contoh penghalusan data ditunjukkan pada Gambar 2.

Pengaruh Variasi Pelarut
Antara Amoniak dan Aquades
terhadap Karakterisasi

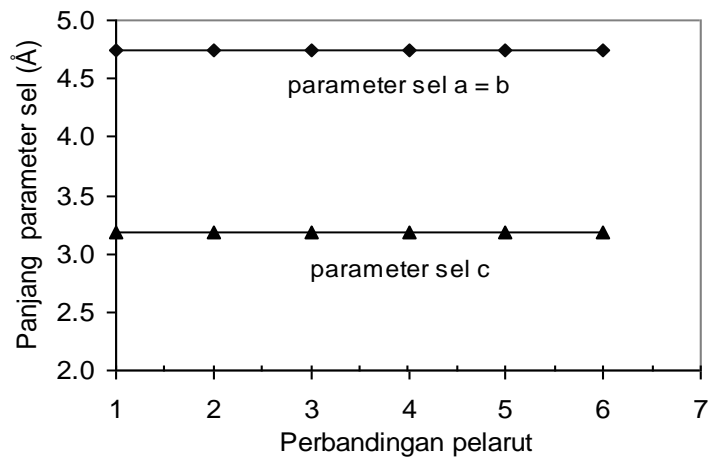


Gambar 2. Pola difraksi sampel S5 hasil penghalusan dengan metode Rietveld menggunakan data XRD. Pengamatan dan perhitungan ditandai dengan (+) dan garis padat. Perbedaan plot ditunjukkan garis dibawah angka nol. Panjang gelombang sinar-X adalah $1,54056 \text{ \AA}$

Sebetulnya ada banyak informasi yang dapat diketahui dari hasil penghalusan seperti Gambar 2. Beberapa di antaranya adalah parameter cacah latar belakang, faktor skala, parameter sel (a, b, c), bentuk profil (U, V, W), arah orientasi kristal (PO), γ , parameter termal, dan posisi atom (x, y, z). Hasil penghalusan seperti Gambar 3 sudah relatif bagus karena sudah memberikan faktor Bragg, R_B sebesar 4,4 (Kisi, 1994). Hasil pencocokan pola difraksi (χ^2) atau penghalusan keseluruhan sampel (S1, S2, S3, S4, S5 dan S6) adalah masing-masing 4,08; 3,87; 3,43; 2,86; 1,79 dan 1,52. Angka yang lebih besar menandakan hasil pencocokan kurang baik dibandingkan dengan yang lebih kecil. Dengan demikian kualitas data XRD sampel S5 dan S6 lebih baik dari pada S1 dan S2.

B. Parameter Sel

Dari hasil penghalusan data dengan metode Rietveld diperoleh hasil keluaran salah satunya adalah parameter sel setiap sampel. Karena $a = b$ maka penggambarannya disatukan saja. Hasil a dan c dapat dilihat pada Gambar 3.

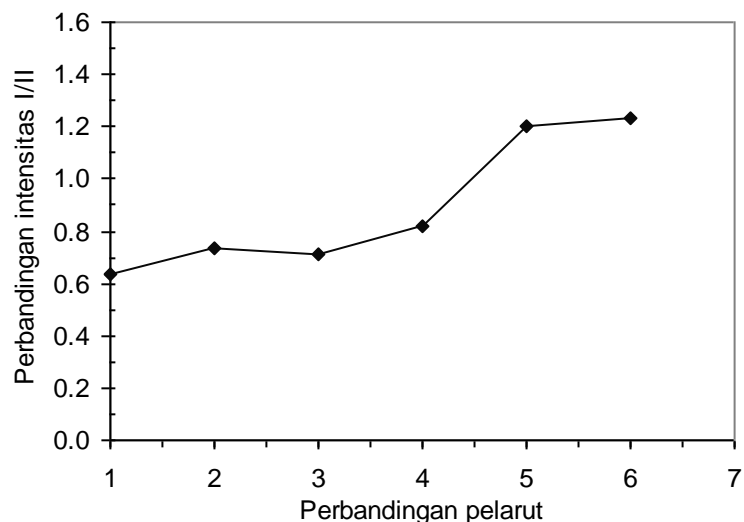


Gambar 3. Parameter sel pada berbagai perbandingan pelarut.

Dari Gambar 3 kelihatan bahwa parameter sel a dan c relatif sama untuk semua perbandingan pelarut. Dari sini dapat dikatakan bahwa sel parameter relatif tidak terpengaruh dengan perbandingan pelarut. Salah satu hal yang dapat mempengaruhi panjang sel adalah kehadiran fasa lain dalam suatu sampel dan perbandingan konsentrasi bahan (Manurung, 2001). Dari keterangan ini jelas bahwa tidak ada fasa lain hadir dalam sampel selain SnO_2 .

C. Kecenderungan Ketinggian Intensitas Puncak hkl antara (110) dan (011)

Setelah dianalisis hasil XRD (Gambar 1), maka puncak I dan II dapat ditentukan hkl-nya yaitu (110) dan (011). Hasil perbandingan itu dapat dilihat pada Gambar 4.



Gambar 4. Perbandingan intensitas puncak I dan II yaitu pada hkl (110) dan (011) sebagai fungsi pelarut.

Hal yang sangat menarik dari penelitian ini adalah adanya kecenderungan ketinggian puncak difraksi pada sudut $2\theta = 26,572$ dan $33,856^\circ$. Puncak itu berubah seiring dengan naiknya perbandingan pelarut yang dipakai pada waktu persiapan sampel. Mula-mula pada perbandingan pelarut 1:1, puncak pada $2\theta = 26,572^\circ$ masih lebih rendah daripada puncak pada $2\theta = 33,856^\circ$. Selanjutnya ketinggian itu berubah pada saat perbandingan pelarut berada di antara 1:4 dan 1:5. Dari Gambar 4 terlihat jelas ada kecenderungan kenaikan perbandingan puncak difraksi pertama ($hkl = 110$) dengan kedua ($hkl = 011$) atau pada sudut difraksi masing-masing pada $2\theta = 26,572$ dan $33,856^\circ$. Hal ini menandakan bahwa semakin besar perbandingan pelarut akan menyebabkan pemantulan dari bidang 110 akan makin bertambah dan pada sisi lain pemantulan dari bidang 011 akan semakin berkurang. Keadaan seperti ini adalah karena letak posisi atom (x,y,z) dan ukuran butiran sampel yang berbeda (Cullity, 1978). Karena dalam penelitian harga (x,y,z) relatif sama maka dapat disimpulkan perbedaan itu disebabkan oleh besar ukuran butir sampel.

KESIMPULAN DAN SARAN

Berdasarkan hasil pembahasan sebelumnya, dapat diambil kesimpulan:

1. Fasa SnO_2 yang dihasilkan memiliki struktur kristal tetragonal dengan parameter sel $a = b$ sekitar $4,748\text{\AA}$, c sekitar $3,188\text{\AA}$ dan sudut $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ dengan simbol grup ruang P 42/ MNM.
2. Analisis struktur kristal dengan menggunakan metode Rietveld diperoleh hasil pencocokan pola difraksi (χ^2) sampel S5 dan S6 lebih baik dari pada S1 dan S2.
3. Perbandingan pelarut tidak merubah harga sel parameter akan tetapi berpengaruh pada tinggi intensitas pada puncak (110) dan (011) yang dalam hal ini merupakan ukuran butir sel.

DAFTAR PUSTAKA

- Cullity, B.D. 1978. *Elements of X-Ray Diffraction*. Addison-Wesley Publishing. Company. Inc. USA. Page 81-85.
- Hunter, B.A and Howard, C.J. 2000. A Computer Program Rietveld Analysis of X-Ray and Neutron Powder Diffraction Patterns. Australian Nuclear Science and Technology Organization. Australia.
- Kisi, E.H. 1994. Rietveld Analysis of Powder Diffraction Patterns. *Material Forum*, 18 p 135-153.
- Maiyuni. 2005. *Karakterisasi Timah Dioksida (SnO_2) dari Pengendapan Timah Diklorida*. Skripsi Universitas Lampung. Bandar Lampung.
- Manurung, P. 2001. Microstructural Design and Characterisation of Alumina/Aluminium Titanate Composites. Thesis of Curtin University of Technology.
- Nakahara, T and Koda, H. 1992. *Chemical Sensor Technology*. Vol. 3 Elsevier, Kodansha p 19-31.
- Rietveld, H.M. 1969. A Profile Refinement for Nuclear and Magnetic Structures, *Journal of Applied Crystallography*. page 2, 65, 71.

- Santos, D.O., Weiller, M.L., Junior, D.Q., Medina, A.N. 2000. CO Gas-Sensing Characteristics of SnO₂ Ceramics Obtained by Chemical Precipitation and Freeze-Drying. *Sensors and Actuators B* 75. page 83-87.
- Sze, M. 1985. *Semiconductor Devices, Physics and Technology*. John Wiley & Sons, New York, p 2.
- Winchell, A. and Winchell, H. 1964. Microscopic Character of Artificial Inorganic. *Solid Sub.*, 69.